(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0119628
(43) 공개일자 2020년10월20일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
G16C 20/20 (2019.01) *G16C 20/30* (2019.01)
G16C 60/00 (2019.01)
(52) CPC특허분류
G16C 20/20 (2019.02)
G16C 20/10 (2019.02)
(21) 출원번호 10-2019-0042072
(22) 출원일자 2019년04월10일
심사청구일자 없음

(71) 출원인
현대자동차주식회사
서울특별시 서초구 헌릉로 12 (양재동)
울산과학기술원
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
기아자동차주식회사
서울특별시 서초구 헌릉로 12 (양재동)
(72) 발명자
차진혁
경기도 화성시 동탄대로24가길 7, 동탄 파크 푸르지오 106-906
정하은
경기도 용인시 기흥구 마북로105번길 7, 현대자동차마북리연구소숙소 110호
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인태평양

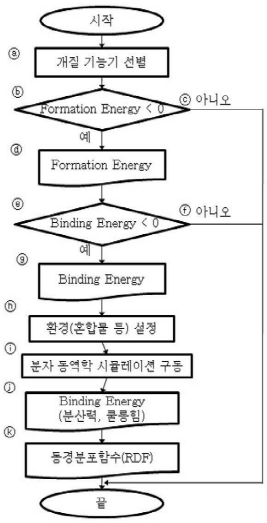
전체 청구항 수 : 총 10 항

(54) 발명의 명칭 **센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법**

(57) 요 약

본 발명은 밀도범함수이론(Density Function Theory, DFT)을 이용하여 개질 후보 기능기들의 형성 에너지(formation energy)를 계산하는 제1 단계; 상기 형성 에너지가 음의 값일 경우, 개질 후보 기능기 각각으로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 밀도범함수이론을 이용하여 계산하는 제2 단계; 및 상기 결합 에너지가 음의 값일 경우, 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가하는 제3 단계;를 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법에 관한 것이다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류
G16C 20/30 (2019.02)
G16C 60/00 (2019.02)
(72) 발명자
곽상규
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50, 울산과학기술원 104동 601-4호
정관영
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50, 울산과학기술원 104-607
이태경
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50, 울산과학기술원 104-607

명 세 서

청구범위

청구항 1

밀도범함수이론(Density Function Theory, DFT)을 이용하여 개질 후보 기능기들의 형성 에너지(formation energy)를 계산하는 제1 단계;

상기 형성 에너지가 음의 값일 경우, 개질 후보 기능기 각각으로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 밀도범함수이론을 이용하여 계산하는 제2 단계; 및

상기 결합 에너지가 음의 값일 경우, 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가하는 제3 단계;를 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

상기 형성 에너지는 하기 수학식 1로 계산되는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법:

[수학식 1]

$$DE_{bond} = E_F - (E_S + E_G)$$

수학식 1에서,

DE_{bond}는 개질 후보 기능기의 형성 에너지이며,

E_F은 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면의 에너지이고,

E_S는 개질전 센서 표면의 에너지이며,

E_G는 개질 후보 기능기의 에너지이다.

청구항 3

청구항 1에 있어서,

상기 결합 에너지는 하기 수학식 2로 계산되는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법:

[수학식 2]

$$E_{binding} = E_A - E_F - E_D$$

수학식 2에서,

$E_{binding}$는 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지이고,

E_A는 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면에 감지 대상 기체가 흡착된 상태에서의 에너지이며,

E_F는 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면의 에너지이고,

E_D는 감지 대상 기체의 에너지이다.

청구항 4

청구항 1에 있어서,

제2 단계 이후 및 제3 단계 이전에 상기 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션 내에 센서가 작동하는 환경에 따라 주변 유체로서 혼합기체를 모델링하는 단계를 더 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 5

청구항 1에 있어서,

제2 단계 이후 및 제3 단계 이전에 상기 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 계산하는 단계를 더 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 6

청구항 5에 있어서,

상기 결합 에너지는 반데르발스 힘(van der Waals force) 및 쿨롱힘(Coulomb force)를 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 7

청구항 1에 있어서,

상기 제3 단계에서의 선택능은

분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 개질 후보 기능기 각각에 대한 감지 대상 기체의 동경분포함수(Radial Distribution Function, RDF)를 도출하는 단계 (3-1); 및

각 개질 후보 기능기에 대하여 도출된 동경분포함수를 비교하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가하는 단계 (3-2);를 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 8

청구항 7에 있어서,

상기 단계 (3-2)에서 선택능 평가는 도출된 동경분포함수의 최대 피크가 가장 높은 개질 후보 기능기를 감지 대상 기체에 대한 선택능이 가장 높은 것으로 판단하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 9

청구항 1에 있어서,

상기 제1 단계에서 계산된 형성 에너지가 양의 값인 개질 후보 기능기는 센서 표면을 개질 가능하지 않은 것으로 판단하는 단계를 더 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

청구항 10

청구항 1에 있어서,

상기 제2 단계에서 계산된 결합 에너지가 양의 값인 개질 후보 기능기는 감지 대상 기체가 흡착되지 않는 것으로 판단하는 단계를 더 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 밀도범함수이론 및 분자동역학을 이용하는 센서 표면 개질용 후보 물질을 스크리닝하는 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 오늘날, 세계적으로 많은 문제가 되고 있는 기체들은 중금속이나 장시간 흡입할 경우 인체에 치명적인 유해 화학성분을 포함하는 가스 또는 미세먼지 등이 있다. 상술한 바와 같은 가스 또는 미세먼지 등의 대상 기체는 발생이 불가피하므로, 상기 대상 기체가 인체에 노출되기 전에 감지하여 위험을 줄일 수 있는 감지 센서의 개발이 주목받고 있다.

[0003] 구체적으로, 한국 등록특허 제1,683,977호(특허문헌 1)에는 기판 상부에 형성된 금속 산화층; 상기 금속 산화층 상부에 형성된 촉매 패턴; 및 상기 촉매 패턴 상부에 형성된 보호층;을 포함하고, 상기 촉매 패턴들 사이의 상기 금속 산화층 상부와 상기 보호층 사이에 빈 공간이 형성되는 수소 센서가 개시되어 있다.

[0004] 그러나, 종래 감지 센서는 특정 농도 이상의 경우에만 측정이 가능하나, 인체에 극소량이 노출되더라도 치명적인 경우는 종래 감지 센서를 이용하여 감지하는 것이 불가능하다. 따라서, 고감도의 센서, 특히 몇몇 특정 기체를 선택적으로 감지할 수 있는 센서의 개발이 필요하다. 이를 위해, 대상 기체만 강하게 흡착하는 기능기를 모색하고, 상기 기능기를 센서 기판에 개질하는 방법에 관한 다양한 연구들이 진행되고 있다.

[0005] 한편, 이러한 감지 센서는 인체에 치명적이라고 알려진 몇몇 기체들에 대해서는 이미 상당한 연구가 진행되었지만, 이 기체들 이외에 다수의 기체를 감지할 수 있는 방법에 대한 연구 개발은 부족한 상황이다. 또한, 세상에 존재하는 매우 많은 물질들 모두를 실험하여 대상 기체에 대한 선택능이 강한 기능기를 선별하는 것은 현실적으로 불가능하다.

[0006] 따라서, 센서 표면 개질이 가능하고 대상 기체에 대한 선택능이 우수한 센서 개질 후보 물질을 스크리닝하는 방법에 대한 연구개발이 필요한 실정이다.

선행기술문헌

특허문헌

[0007] (특허문헌 0001) 한국 등록특허 제1,683,977호 (공개일: 2016. 3. 3.)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 이에, 본 발명은 센서 표면 개질이 가능하고 감지 대상 기체에 대한 선택능이 우수한 센서 개질 후보 물질을 스크리닝하는 방법을 제공하고자 한다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명은 밀도범함수이론(Density Function Theory, DFT)을 이용하여 개질 후보 기능기들의 형성 에너지(formation energy)를 계산하는 제1 단계; 상기 형성 에너지가 음의 값일 경우, 개질 후보 기능기 각각으로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 밀도범함수이론을 이용하여 계산하는 제2 단계; 및 상기 결합 에너지가 음의 값일 경우, 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가하는 제3 단계;를 포함하는, 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법을 제공한다.

발명의 효과

[0010] 본 발명에 따른 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법은 센서의 선택능 향상을 위해 사용될 표면 개질 후보 기능기의 개질 적합성을 판단하고, 감지 대상 기체와 표면 개질 후보 기능기간 상호작용에서 일어나는 전자 이동에 관한 정량 평가가 가능하며, 이로부터 센서 선택능 향상을 위한 표면 설계에 적용하여 고감도의 센서를 설계할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0011] 도 1은 본 발명에 따른 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법을 도시한 흐름도이다.

도 2는 본 발명의 일실시예에 따른 분자동역학 시뮬레이션을 이용하여 계산한 동경분포함수로서, a)는 산소의 동경분포함수이고, b)는 포름알데히드의 동경분포함수이다.

도 3은 본 발명의 일실시예에 따른 분자동역학 시뮬레이션을 이용하여 계산한 결합 에너지 결과로서, a)는 산소의 결합 에너지(반데르발스 힘 및 쿨롱힘 포함)이고, b)는 포름알데히드의 결합 에너지(반데르발스 힘 및 쿨롱힘 포함)이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0012] 이하 본 발명을 상세히 설명한다.

[0013] 본 발명에 따른 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법은 밀도범함수이론(Density Function Theory, DFT)을 이용하여 개질 후보 기능기들의 형성 에너지(formation energy)를 계산하는 제1 단계; 상기 형성 에너지가 음의 값일 경우, 개질 후보 기능기 각각으로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 밀도범함수이론을 이용하여 계산하는 제2 단계; 및 상기 결합 에너지가 음의 값일 경우, 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가하는 제3 단계;를 포함한다.

[0015] 제1 단계

[0016] 제1 단계에서는 밀도범함수이론(Density Function Theory, DFT)을 이용하여 개질 후보 기능기들의 형성 에너지(formation energy)를 계산한다.

[0017] 상기 개질 후보 기능기들은 센서 표면 개질용 잠재적 기능기로서 검증이 필요한 후보 기능기들을 의미하며, 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기들은 문헌 조사를 통해 결정될 수 있다.

[0018] 상기 형성 에너지는 센서 표면이 개질 후보 기능기로 개질되었을 때 안정성을 평가할 수 있는 인자로서, 하기 수학식 1로 계산될 수 있다.

[0019] [수학식 1]

[0020] $DE_{bond} = E_F - (E_S + E_G)$

[0021] 수학식 1에서,

[0022] DE_{bond}는 개질 후보 기능기의 형성 에너지이며,

[0023] E_F은 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면의 에너지이고,

[0024] E_S는 개질전 센서 표면의 에너지이며,

[0025] E_G는 개질 후보 기능기의 에너지이다.

[0027] 예를 들어, 센서 표면이 그래핀으로 구성되고, 개질 후보 기능기가 아미노페닐기일 경우, E_F은 아미노페닐기로 개질된 그래핀의 에너지이고, E_S는 개질전 그래핀의 에너지이며, E_G는 아미노페닐기의 에너지이다.

[0029] 제2 단계

[0030] 본 단계에서는 상기 형성 에너지가 음의 값일 경우, 개질 후보 기능기 각각으로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 밀도범함수이론을 이용하여 계산한다. 구체적으로, 상기 형성 에너지가 음의 값일 경우, 이론적으로 센서 표면을 개질 후보 기능기로 개질 가능한 것으로 판단하여, 결합 에너지를 밀도범함수이론으로 계산할 수 있다.

[0031] 이때, 상기 결합 에너지는 하기 수학식 2로 계산될 수 있다.

[0032] [수학식 2]

[0033] $E_{binding} = E_A - E_F - E_D$

[0034] 수학식 2에서,

[0035] $E_{binding}$는 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지이고,

[0036] E_A는 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면에 감지 대상 기체가 흡착된 상태에서의 에너지이며,

[0037] E_F는 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면의 에너지이고,

[0038] E_D는 감지 대상 기체의 에너지이다.

[0040] 예를 들어, 센서 표면이 그래핀으로 구성되고, 개질 후보 기능기가 아미노페닐기이며, 감지 대상 기체가 포름알데히드일 경우, E_A는 아미노페닐기로 개질된 그래핀에 감지 대상 기체인 포름알데히드가 흡착된 상태에서의 에너지이고, E_F는 아미노페닐기로 개질된 그래핀의 에너지이며, E_D는 포름알데히드의 에너지이다.

[0041] 상기 결합 에너지는 감지 대상 기체가 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면에 흡착된 상태에서의 전자의 이동에 관한 정량 평가에 이용 가능하고, 상기 정량 평가는 동일한 감지 대상 기체를 흡착하더라도 센서 기판에서의 전류 변화가 더 큰 개질 후보 기능기, 즉 고감도의 개질 후보 기능기를 스크리닝할 수 있다.

[0043] 상기 제1 단계에서 계산된 형성 에너지가 양의 값인 개질 후보 기능기는 센서 표면을 개질 가능하지 않은 것으로 판단하는 단계를 더 포함할 수 있다.

[0045] 제2 단계 이후 및 제3 단계 이전에 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션 내에 센서가 작동하는 환경에 따라 주변 유체로서 혼합기체를 모델링하는 단계를 더 포함할 수 있다.

[0046] 이때, 상기 분자동역학은 원자 간에 작용하는 힘(공유결합 및/또는 비공유결합)을 기반으로 경험적인 상호작용(forcefield)을 결정하고 이를 바탕으로 시뮬레이션을 구현할 수 있다. 구체적으로, 상기 분자동역학은 각 분자를 구성하는 원자들에 대하여 비공유결합 원자 간에 작용하는 힘을 레널드-존스 포텐셜(Lennard-Jones potential)의 파라미터로 표현하고, 원자 간에 작용하는 힘이 양 또는 음 전하의 인력에 의한 것인지, 또는 비공유결합 원자 간에 작용하는 인력 때문인지에 관한 구별도 가능하다. 뿐만 아니라, 다양한 조성의 혼합기체를 설정하여 선택능 향상에 관한 직접적인 평가가 가능하다.

[0047] 예를 들어, 분자동역학 시뮬레이션 시스템 안에 총 100 개의 기체를 채우고, 그 중 50개는 감지 대상 기체인 포름알데히드로, 나머지 50개는 산소로 혼합기체를 구성할 수 있다. 이후 상기 시스템 내 가운데에 개질 후보 기능기인 아미노페닐을 두고 시스템을 구성할 수 있다. 또한, 상기 분자동역학 시뮬레이션은 상술한 바와 같이 시스템을 구성한 후 원자수와 시스템의 체적 및 온도를 일정하게 하여 시뮬레이션을 구동할 수 있다.

[0049] 제3 단계

[0050] 제3 단계에서는 상기 결합 에너지가 음의 값일 경우, 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가한다.

[0051] 상기 제3 단계에서의 선택능은 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 개질 후보 기능기 각각에 대한 감지 대상 기체의 동경분포함수(Radial Distribution Function, RDF)를 도출하는 단계 (3-1); 및 각 개질 후보 기능기에 대하여 도출된 동경분포함수를 비교하여 감지 대상 기체에 대한 개질 후보 기능기의 선택능을 평가하는 단계 (3-2);를 포함할 수 있다.

[0052] 상기 단계 (3-1)에서는 분자동역학 시뮬레이션 시스템 내 개질 후보 기능기가 위치하고 있는 상태에서 개질 후보 기능기를 중심으로 주변에 상호작용하는 감지 대상 기체와 주변 유체의 분포를 동경분포함수로 도출할 수 있다.

[0053] 예를 들어, 상기 단계 (3-1)에서는 분자동역학 시뮬레이션 시스템 내 아미노페닐기가 위치하고 있는 상태에서 아미노페닐기를 중심으로 주변에 상호작용하는 포름알데히드와 산소의 분포를 동경분포함수로 도출할 수 있다(도 2 참조).

[0054] 도 2에서 PANI I 및 PANI II는 폴리아닐린으로, PANI I은 하기 화학식 1로 표시되고(leucoemeraldine), PANI

II는 하기 화학식 2로 표시된다(pernigraniline).

[0055] [화학식 1]

[0056] $[C_6H_4-NH-C_6H_4-NH-]_n$

[0057] [화학식 2]

[0058] $[C_6H_4-N=C_6H_4=N-]_n$

[0059] 상기 단계 (3-2)에서 선택능 평가는 도출된 동경분포함수의 최대 피크가 가장 높은 개질 후보 기능기를 감지 대상 기체에 대한 선택능이 가장 높은 것으로 판단할 수 있다.

[0060] 구체적으로, 도 2의 b)를 참조하면, 감지 대상 기체인 포름알데히드의 동경분포함수에서 PANI I가 최대 피크를 갖는 것으로 나타났으며, 이로부터 아미노페닐기, PANI I 및 PANI II 중 포름알데히드에 대한 선택능은 PANI I이 가장 높은 것으로 판단할 수 있다.

[0062] 제2 단계 이후 및 제3 단계 이전에 상기 분자동역학(molecular dynamics) 시뮬레이션을 이용하여 개질 후보 기능기로 개질된 센서 표면과 감지 대상 기체와의 결합 에너지(binding energy)를 계산하는 단계를 더 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 결합 에너지는 반데르발스 힘(van der Waals force) 및 쿨롱힘(Coulomb force)를 포함할 수 있다.

[0063] 예를 들어, 분자동역학 시뮬레이션을 진행할 경우, 구동 시간을 결정하고 구동할 수 있으며, 이때, 각 단위 시간별 입자 분포를 확인하고 전도 상태를 판단하며, 전체 구동시간에 대하여 입자 분포 및 전도 상태를 합산할 수 있다. 특히, 분자동역학 시뮬레이션에서 비공유결합 원자간 작용하는 힘은 반데르발스 힘(van der Waals force) 및 쿨롱힘(Coulomb force)으로 작용하는데, 상술한 2개의 힘은 구분하는 것이 가능하다. 이로 인해, 상기 반데르발스 힘 및 쿨롱힘은 추후 전기적 신호의 감도에 큰 영향을 주는 입자에 관한 응용 또는 분산력을 이용하는 응용에 유용하게 사용될 수 있다.

[0064] 일실시예로, 개질 후보 기능기인 아미노페닐기와 감지 대상 기체인 포름알데히드를 대상으로 분자동역학 시뮬레이션을 진행한 결과(도 3 참조), 반데르발스 힘과 쿨롱힘의 작용 비율은 1:1로 나타났다. 또한, 산소의 경우, 쿨롱힘에 의한 인력 작용보다 반데르발스 힘에 의한 힘이 강한 것으로 나타났다. 이때, 도 3에서 ES는 쿨롱힘이고, vdW는 반데르발스 힘이며, Tot는 총 결합 에너지, 즉 쿨롱힘과 반데르발스 힘의 합이다.

[0065] 상기 반데르발스 힘과 쿨롱힘은 상대적인 값의 차이가 있기 때문에 식별이 가능하나, 매우 작은 값이므로 다른 기능기와의 비교가 필요할 것으로 판단된다.

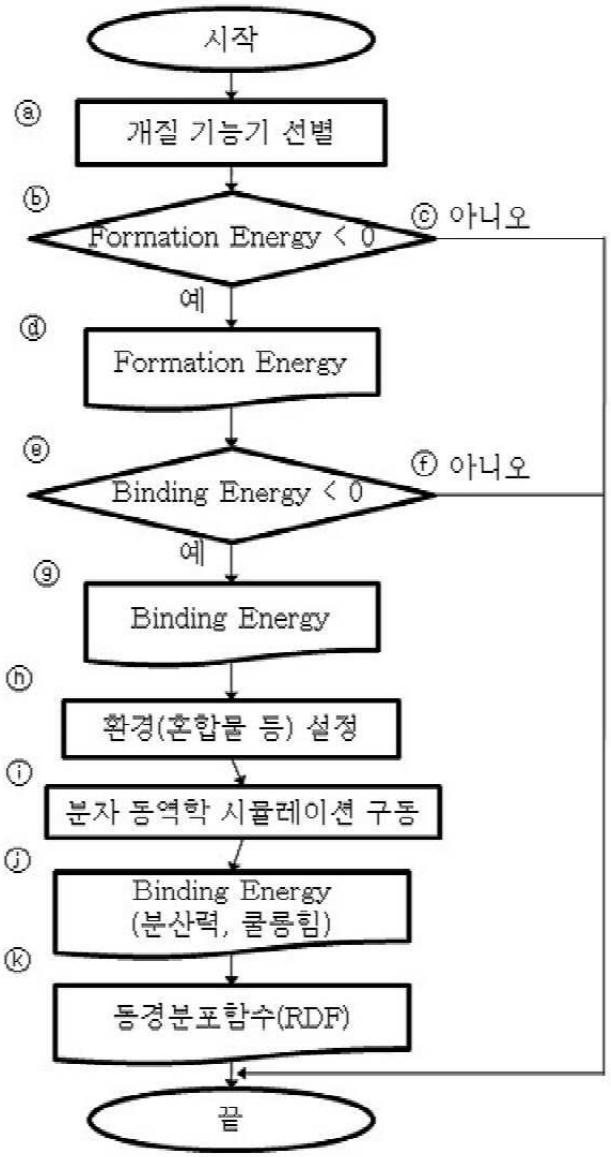
[0067] 또한, 상기 제2 단계에서 계산된 결합 에너지가 양의 값인 개질 후보 기능기는 감지 대상 기체가 흡착되지 않는 것으로 판단하는 단계를 더 포함할 수 있다.

[0069] 상술한 바와 같은 본 발명에 따른 센서 개질 후보 물질의 스크리닝 방법은 센서의 선택능 향상을 위해 사용될 표면 개질 후보 기능기의 개질 적합성을 판단하고, 감지 대상 기체와 표면 개질 후보 기능기간 상호작용에서 일어나는 전자 이동에 관한 정량 평가가 가능하며, 이로부터 센서 선택능 향상을 위한 표면 설계에 적용하여 효과적인 센서 설계에 기여할 수 있다.

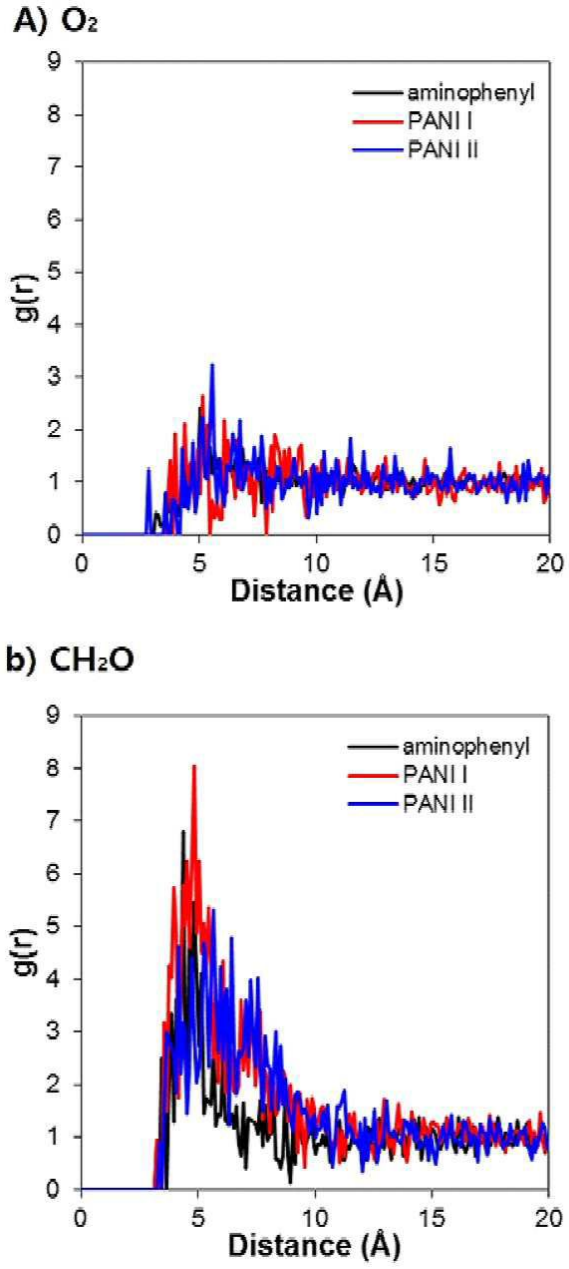
[0070] 이상에서 본 발명은 기재된 실시예에 대해서만 상세히 설명되었지만 본 발명의 기술사상 범위 내에서 다양한 변형 및 수정이 가능함은 당업자에게 있어서 명백한 것이며, 이러한 변형 및 수정이 첨부된 청구범위에 속함은 당연한 것이다.

도면

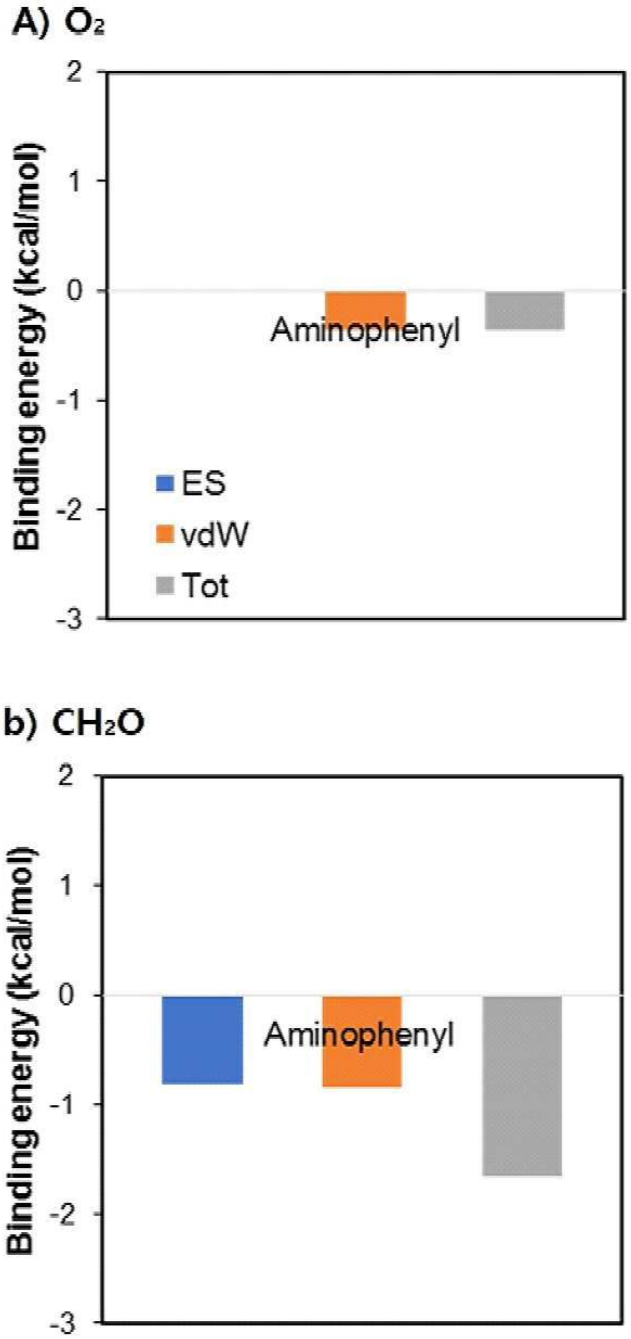
도면1


시작
ⓐ
개질 기능기 선별
ⓑ
Formation Energy < 0
ⓒ 아니오
예
ⓓ
Formation Energy
ⓔ
Binding Energy < 0
ⓕ 아니오
예
ⓖ
Binding Energy
ⓗ
환경(혼합물 등) 설정
ⓘ
분자 동역학 시뮬레이션 구동
ⓙ
Binding Energy
(분산력, 쿨롱힘)
ⓚ
동경분포함수(RDF)
끝

도면2


A) O2
aminophenyl
PANI I
PANI II
g(r)
Distance (Å)
b) CH2O
aminophenyl
PANI I
PANI II
g(r)
Distance (Å)

도면3


A) O2
Binding energy (kcal/mol)
2
1
0
-1
-2
-3
Aminophenyl
ES
vdW
Tot
b) CH2O
Binding energy (kcal/mol)
2
1
0
-1
-2
-3
Aminophenyl